

(19) 日本国特許庁 (J.P.)

# (12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-15142

(P 2 0 0 1 - 1 5 1 4 2 A)

(43) 公開日 平成13年1月19日 (2001.1.19)

(51) Int. Cl. 7	識別記号	F I	テマコード (参考)
H01M 8/06		H01M 8/06	G 3D038
B01D 53/22		B01D 53/22	4D006
B60K 15/03		C01B 3/00	A 4G040
C01B 3/00		3/38	5H026
3/38		3/56	Z 5H027

審査請求 未請求 請求項の数10 O L (全8頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平11-185191

(22) 出願日 平成11年6月30日 (1999.6.30)

(71) 出願人 000006208

三菱重工業株式会社

東京都千代田区丸の内二丁目5番1号

(72) 発明者 飯嶋 正樹

東京都千代田区丸の内二丁目5番1号 三菱重工業株式会社内

(72) 発明者 小林 一登

東京都千代田区丸の内二丁目5番1号 三菱重工業株式会社内

(74) 代理人 100060069

弁理士 奥山 尚男 (外2名)

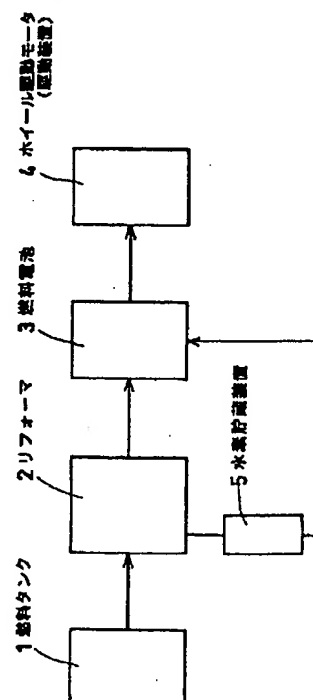
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料電池車両の走行方法及び燃料電池車両

(57) 【要約】

【課題】 燃料から得られた水素を効率よく、かつ高純度で回収して燃料電池に供給することができるようにした燃料電池車両の走行方法及び燃料電池車両を提供する。

【解決手段】 水素を選択的に透過する水素透過性分離膜を具備したリフォーマ2に燃料を供給して水素を生成し、該生成された水素を燃料電池3に供給し、該燃料電池3により得られた電力により駆動装置4を作動させ、車両を走行させるようにした。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 水素を選択的に透過する水素透過性分離膜を具備したリフォーマに燃料を供給して水素を生成し、該生成された水素を燃料電池に供給し、該燃料電池により得られた電力により駆動装置を作動させ、車両を走行させることを特徴とする燃料電池車両の走行方法。

【請求項2】 水素透過性分離膜を具備したリフォーマがメンブレンリフォーマであることを特徴とする請求項1に記載の燃料電池車両の走行方法。

【請求項3】 リフォーマで生成した水素を水素吸蔵合金に一旦貯蔵し、該水素吸蔵合金からの該水素を燃料電池に供給することを特徴とする請求項1又は2に記載の燃料電池車両の走行方法。

【請求項4】 水素吸蔵合金を内蔵する水素貯蔵装置を複数具備し、一部の水素貯蔵装置がリフォーマから供給される水素を吸蔵しているときに他部の水素貯蔵装置からは水素を排出して燃料電池に供給することを特徴とする請求項1又は2に記載の燃料電池車両の走行方法。

【請求項5】 燃料タンクと、該燃料タンクから供給される燃料から水素を生成する水素透過性の分離膜を具備したリフォーマと、該水素を供給されて電力を得る燃料電池と、該電力により作動する駆動装置を具備することを特徴とする燃料電池車両。

【請求項6】 水素透過性の分離膜を具備したリフォーマがメンブレンリフォーマであることを特徴とする請求項5に記載の燃料電池車両。

【請求項7】 水素透過性の分離膜を具備したリフォーマが、燃料の部分酸化を経てCOシフト反応により水素を生成し、水素透過性の分離膜により選択的に水素を得るリフォーマであることを特徴とする請求項5に記載の燃料電池車両。

【請求項8】 水素透過性の分離膜を具備したリフォーマが、燃料の水蒸気による改質反応を経てCOシフト反応により水素を生成し、水素透過性の分離膜により選択的に水素を得るリフォーマであることを特徴とする請求項5に記載の燃料電池車両。

【請求項9】 水素透過性の分離膜を具備したリフォーマからの水素を燃料電池に供給する前に一旦貯蔵する水素吸蔵合金を内蔵した水素貯蔵装置を具備することを特徴とする請求項5から8の何れかに記載の燃料電池車両。

【請求項10】 燃料がCNG、エタン、プロパン、ブタン、ガソリン、ナフサ、ジメチルエーテル、メタノールの何れか1つ、又は2つ以上の混合物であることを特徴とする請求項5から9の何れかに記載の燃料電池車両。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、燃料電池車両の走行方法及び燃料電池車両に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 現在、燃料電池自動車の開発が盛んに行われている。燃料電池自動車は、水素を燃料からリフォーマによって製造し、得られた水素を燃料電池に供給して電気を得て、得られた電気によってモータを回転させるといった原理を採用している。このような原理は、4輪で走行する自動車はもちろん、2輪自動車や軌道上を走行する列車等の車両全般に適用できる。燃料電池を採用し駆動装置を作動させるシステムとすることにより、エネルギー効率がよく、地球環境問題にもなっているCO<sub>2</sub>の排出が少なく、NO<sub>x</sub>の排出がほとんどないものとすることができる。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】 燃料電池に供給する水素はより高純度のものが好ましい。例えば、COを含んで供給されると燃料電池の寿命を大幅に低下させるし、水素以外の成分は燃料電池の性能に寄与せず、その成分が入り込むだけ燃料電池を大きくする必要も生じる。また、車両に積載する都合や車両の性能や機能を向上させる必要から、より小型な装置とすることが望まれており、この点からも、より高純度な水素を、より高効率に得て燃料電池に供給する必要がある。本発明は、上記事情に鑑みなされたものであり、燃料から得られた水素を効率よく、かつ高純度で回収して燃料電池に供給することができるようにした燃料電池車両の走行方法及び燃料電池車両を提供することを目的とする。

## 【0004】

【課題を解決するための手段】 上記目的を達成するために、本発明に係る燃料電池車両の走行方法は、水素を選択的に透過する水素透過性分離膜を具備したリフォーマに燃料を供給して水素を生成し、該生成された水素を燃料電池に供給し、該燃料電池により得られた電力により駆動装置を作動させ、車両を走行させることを特徴とする。前記水素透過性分離膜を具備したリフォーマは、メンブレンリフォーマとすることができる。また、前記リフォーマで生成した水素は、水素吸蔵合金に一旦貯蔵し、該水素吸蔵合金からの該水素を燃料電池に供給するようにすることができる。さらに、水素吸蔵合金を内蔵する水素貯蔵装置を複数具備し、一部の水素貯蔵装置がリフォーマから供給される水素を吸蔵しているときに他部の水素貯蔵装置からは水素を排出して燃料電池に供給するようにすることができる。

【0005】 本発明は、別の側面として燃料電池車両であり、燃料タンクと、該燃料タンクから供給される燃料から水素を生成する水素透過性の分離膜を具備したリフォーマと、該水素を供給されて電力を得る燃料電池と、該電力により作動する駆動装置を具備することを特徴とする。前記水素透過性の分離膜を具備したリフォーマは、メンブレンリフォーマとすることができる。また、前記水素透過性の分離膜を具備したリフォーマは、燃料の部分酸化を経てCOシフト反応により水素を生成し、

水素透過性の分離膜により選択的に水素を得るリフォーマとすることができる。また、前記水素透過性の分離膜を具備したリフォーマは、燃料の水蒸気による改質反応を経てCOシフト反応により水素を生成し、水素透過性の分離膜により選択的に水素を得るリフォーマとすることができる。

【0006】さらに、前記水素透過性の分離膜を具備したリフォーマからの水素を燃料電池に供給する前に一旦貯蔵する水素吸蔵合金を内蔵した水素貯蔵装置を具備することもできる。前記燃料は、CNG、エタン、プロパン、ブタン、ガソリン、ナフサ、ジメチルエーテル、メタノールの何れか1つ、又は2つ以上の混合物とすることができる。

【0007】

【発明の実施の形態】以下に本発明に係る実施の形態の例を図面にもとづいて説明する。図1は、本発明に係る燃料電池自動車について、その一実施の形態のシステムを説明する概念図である。この概念図に示すように燃料電池自動車は、燃料タンク1と、該燃料タンク1から供給される燃料から水素を製造するためのリフォーマ2と、該水素の供給を受けて電力を発生する燃料電池3と、該燃料電池3によって得られる電力によって回転するホイール駆動モータ（駆動装置）4とを備えている。燃料電池3は、固体高分子型（PEFC）である。本発明で使用する燃料電池は、一般的に、電池活性物質（燃料）を連続的に外部から供給し、放電生成物を逐次系外へ除去し、燃焼反応を電気化学的に行わせ、直接電気エネルギーに変換する電池である。従来、リン酸型（PAFC）、熔融炭酸塩型（MCFC）、固体電解質型（SOFC）あるいは固体高分子型（PEFC）などの燃料電池がある。このうち、固体高分子型のものが本発明においては特に好適である。リフォーマ2は、図2及び図3に示すようにメンブレンリフォーマである。各種のリフォーマのうちメンブレンリフォーマは後述するように、燃料改質における反応温度を低く押さえることができるなどの理由により、本発明の実施にあたっては特に好適である。なお、図1では省略しているが、本発明に係る燃料電池自動車は、走行に必要な他の制御機器を含めて各種パーツなどを備える。

【0008】図2、3に示すように、このメンブレンリフォーマ（水素製造装置）2では、燃料と水蒸気の混合ガスを原料供給口200から導入する。導入された混合ガスは、改質触媒層201で改質されて、水素ガスを含むガスを発生する。発生したガス中の水素ガスは、水素透過管（メンブレンチューブ）203を透過して水素出口202から流出する。また、水素透過管203を透過しなかったガス（CO<sub>2</sub>、CO、H<sub>2</sub>O、未反応燃料）は、図示しないオフガス出口から排出し、リサイクルあるいは排出される。改質触媒層201及び水素透過管203は、内筒204内に収納される。

【0009】一方、このメンブレンリフォーマ2では、バーナタイル205の中央に設けた燃焼バーナ206を備えている。この燃焼バーナ206は、燃料ガス管207を介して導入した燃料ガスを、空気取り入れ管208を介して取り入れた空気によって燃焼する。これによって、水蒸気改質反応に必要な熱エネルギーを改質触媒層201に供給して所定の温度に維持する。内筒204は、ケーシング209によってカバーされており、燃焼排ガスは、排ガス出口210より排出される。

【0010】本実施の形態では、燃料としては、天然ガス、ナフサ、軽質炭化水素（メタン、エタン、プロパン、ブタンを含む）、ジメチルエーテル及びメタノールなどのアルコールに代表される含酸素炭化水素を挙げることができる。さらに、イオウを含まないガソリンもその対象とすることができる。しかし、CNGといわれる圧縮天然ガス、プロパンガス、ブタンガスは、社会的供給基盤が既にできており、発熱量も高くタンク容量を小さくすることができるので本発明に特に好適である。

【0011】本実施の形態では、使用する改質触媒は、上述の原料ガスから水素を水蒸気改質方法により製造する場合に従来から使用してきたいずれの触媒も採用することができる。上記水素透過管203は、製造された水素のみを透過して上記燃料電池に供給する水素透過性の金属膜より構成されている。水素透過性の金属膜は、水素のみを選択的に透過させるので、分離された水素の純度は、99.999%以上と極めて高く、固体高分子燃料電池用の水素として最適である。

【0012】加えて、反応に従って生成物から生成水素を水素透過管203により、直ちに選択的に分離して生成物中の水素分圧を低下させる。このため、反応は水素増大側に進み、結果的に同じ反応温度での転化率が大きくなる。換言すれば、従来のメタン改質法などでは反応域の温度を約800℃にすることが必要であったが、水素透過管203を使用することにより、本実施の形態のメンブレンリフォーマ2では、同じ値の転化率を500～600℃の温度で達成することができる。このように、水素透過管203で水素を透過して化学反応を水素増大側に移行させることができるので、改質温度が200～300℃程度低下する。それにより、反応ガスを加熱する熱量が節減され、熱効率が大幅に向上する。また、反応温度が低いので、装置には耐熱性の高くない廉価な材料を使用でき、したがって装置のコストを軽減できる。このようなことから本実施の形態は、燃料電池自動車に特に適している。

【0013】水素透過性金属膜はその厚さが5～50μmであって、無機多孔層上に形成されて選択的に水素を透過させることができるものである。その下の無機多孔層は水素透過性の金属膜を保持するための担体であって、厚さが0.1mmから1mmの範囲で多孔性のステンレス鋼不織布、セラミックス、ガラスなどから形成さ

れる。さらに、その内側には構造強度部材として単層もしくは複数層からなる金網を配置することが好適である。好適には、水素透過性の金属膜は、Pdを含む合金、Niを含む合金又はVを含む合金のいずれかの無孔質層であることが好ましい。Pdを含む合金にはPd・Ag合金、Pd・Y合金、Pd・Ag・Au合金などを挙げることができ、Vを含む合金にはV・Ni、V・Ni・Coなどを挙げることができ、またNiを含む合金にはLaNi<sub>3</sub>などを挙げることができる。また、無孔質Pd層の製作方法は例えば米国特許第3155467号明細書に開示されている。

【0014】本実施の形態に係る燃料電池自動車は、図1に示すように、さらに水素吸蔵合金を内蔵する水素貯蔵装置5を備えてもよく、これは、上記メンブレンリフォーマ2の水素出口を、この水素貯蔵装置5に接続可能としている。これによって、メンブレンリフォーマ2の回収側の水素分圧を下げ、水素を迅速にメンブレンリフォーマ2から引き出すことができる。また、水素貯蔵装置5に貯蔵した水素は、自動車の運転始動時に燃料電池3に供給することができる。したがって、運転開始と同時に発車ができるといった効果を期待することができる。なお、水素吸蔵合金は、多量の水素を貯蔵することが可能であり、その水素は、加熱又は減圧によって放出し、冷却又は加圧によって吸蔵することが可能である。また、その放出・吸蔵は可逆的である。

【0015】ここで、図4、図5に水素貯蔵装置5を二つ並列に備えた実施の形態を示す。この実施の形態では、図1の実施の形態と異なり、常時いずれかの水素貯蔵装置5A、5Bをメンブレンリフォーマ2と接続している。なお、図1と同一参照番号を付けた要素は、図1と同様の機能をはたす。図4では、メンブレンリフォーマ2と水素貯蔵装置5Aが接続し、水素貯蔵装置5Bが燃料電池3と接続している。ここで、水素貯蔵装置5Aを20～40℃に冷却し、水素貯蔵装置5Bを50～100℃に加熱する。そうすると、水素貯蔵装置5Aが水素を貯蔵し、水素貯蔵装置5Bが水素を放出し、燃料電池3に供給する。図5では、メンブレンリフォーマ2と水素貯蔵装置5Bが接続し、水素貯蔵装置5Aが燃料電池3と接続している。ここで、水素貯蔵装置5Bを20～40℃に冷却し、水素貯蔵装置5Aを50～100℃に加熱する。そうすると、水素貯蔵装置5Bが水素を貯蔵し、水素貯蔵装置5Aが水素を放出し、燃料電池3に供給する。

【0016】本実施の形態では、水素貯蔵装置5A、5Bを図示しない制御装置によって切り換えて作動させる。これによって、水素吸蔵合金によるメンブレンリフォーマ2からの水素引き出しが常時行われることになる。この結果、メンブレンリフォーマ2の金属膜の膜面積を小さくすることができ、したがって、コストダウンを図ることができる。また、燃料電池3へ供給する水素

の圧力を上げることができるので、燃料電池の性能を向上させることができる。勿論、図1の実施の形態と同様、スタート時に貯蔵した水素を利用することもできる。さらに、リフォーマ自体の負荷変動が小さくなるので、耐久性が向上する。なお、上記は水素貯蔵装置を二つ備えた場合の説明であるが、勿論3つ以上の水素貯蔵装置を備えて制御装置によって連動作動させてもよい。

【0017】次に、リフォーマ2に関し、別の種類のものである採用した他の実施の形態を図6、図7に示す。図6の(A)は、燃料の部分酸化を(800～1000℃)を経てCOシフト反応により水素を生成し、水素透過性分離膜により高純度水素を得るようにした形態の例である。図7の(A)は、燃料の水蒸気による改質反応(700～800℃)を経てCOシフト反応により水素を生成し、水素透過性分離膜により高純度水素を得るようにした形態の例である。なお、これら図6の(A)、図7の(A)の実施の形態において、図1と同一参照番号を付けた要素は、リフォーマ2の形態が異なることを除き、実質的に図1と同様の機能をはたす。これらの実施の形態は、メンブレンリフォーマを採用した図1～3の実施の形態に対して、反応温度が高く、装置も大きくなるが、水素透過性分離膜と組み合わせることにより、生成した水素を含むガスから燃料電池に適した高純度な水素を得ることができる。一方、図6の(B)、図7の

(B)は、リフォーマの後に水素貯蔵装置を設けたものである。水素貯蔵装置5は、図4、5について前述したようにこれを複数並列して設けたタイプとし、複数の水素貯蔵装置を制御装置によって切り換え作動させることができる。これらの実施の形態においても、図1と同一参照番号を付けた要素は、リフォーマ2の形態が異なることを除き、実質的に図1と同様の機能をはたす。

#### 【0018】さらに他の実施の形態

本発明に係る燃料電池自動車は、図1～図3、図4、図5、図6、図7について説明した実施の形態に限らず、他の形態を含むものである。例えば、上記したメンブレンリフォーマに限らず、他の型のものであってもよい。要するに改質触媒層に隣接して水素透過型の金属膜を配置し、金属膜を水素のみが透過するタイプのものであれば本発明の目的に反しない限り採用することができる。

【0019】さらに、図1の実施の形態において、図4、5の実施の形態と同様の複数の水素貯蔵装置を切り換えて使用する経路と、水素を直接燃料電池に送る経路とを並列することができる。これによって、水素を直接燃料電池に送る状態と、常時いずれかの水素貯蔵装置を使用する状態とを切り換えるようにすることができる。また同様に、図6の(B)、図7の(B)の実施の形態においても、水素を直接燃料電池に送る経路を並列した形態を採用することができる。

#### 【0020】

【発明の効果】上記したところから明かなように、本発

明によれば、燃料から得られた水素を効率よく、かつ高純度で回収して燃料電池に適した水素を供給することができる燃料電池車両の走行方法及び燃料電池車両が提供される。また、リフォーマとしてメンブレンリフォーマを採用した場合には、燃料改質における反応温度を低くできる。さらに、本発明に係る燃料電池自動車は、水素吸蔵合金を内蔵する水素貯蔵装置を備え、上記メンブレンリフォーマあるいは水素透過性の分離膜の水素出口を、該水素貯蔵装置に接続可能とすることができる。これによって、回収側の水素分圧を下げて、水素を迅速にメンブレンリフォーマから引き出すことができる。さらに、水素貯蔵装置に貯蔵した水素は、自動車の運転始動時に活用することができるので、運転開始と同時に発車ができるといった効果を期待することができる。複数の水素貯蔵装置を並列した場合には、前記したように、コストダウン、装置性能の向上をさらに図ることができる。またさらに、CNGといわれる圧縮天然ガス、プロパンガス、ブタンガス、ジメチルエーテルを燃料として採用すれば、社会的供給基盤が既にできており、発熱量も高く、タンク容量を小さくすることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明に係る燃料電池自動車の一実施の形態を説明する概念図である。

【図2】本発明に係る燃料電池自動車の図1の実施の形態に採用したメンブレンリフォーマを説明する部分断面

斜視図である。

【図3】図2のA部拡大図である。

【図4】水素貯蔵装置を複数設けた別の実施の形態を説明する概念図である。

【図5】水素貯蔵装置を複数設けた別の実施の形態を説明する概念図である。

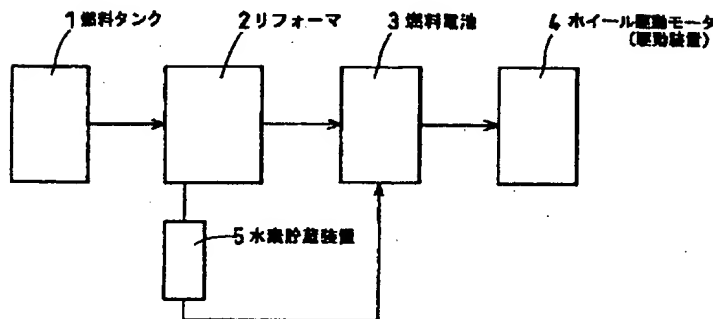
【図6】他のリフォーマを設けた実施の形態を説明する概念図である。

【図7】さらに他のリフォーマを設けた実施の形態を説明する概念図である。

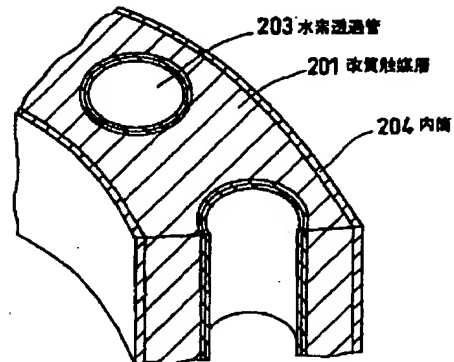
【符号の説明】

- 1 燃料タンク
- 2 リフォーマ
- 3 燃料電池
- 4 駆動装置
- 5、5A、5B 水素貯蔵装置
- 201 改質触媒層
- 203 水素透過管
- 204 内筒
- 205 パーナータイル
- 206 燃焼バーナ
- 207 燃料ガス管
- 208 空気取り入れ管
- 209 ケーシング
- 210 排ガス出口

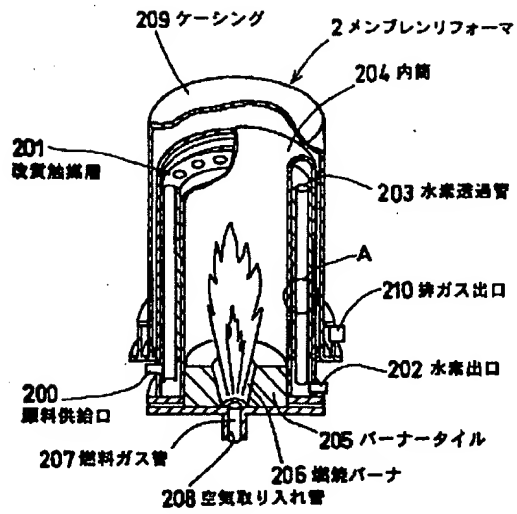
【図1】



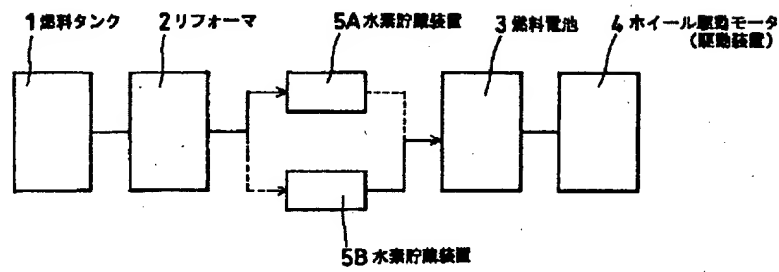
【図3】



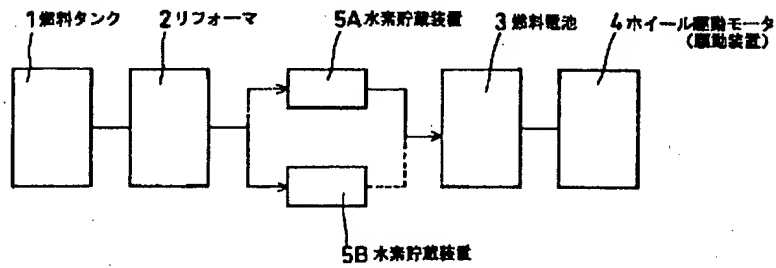
【図2】



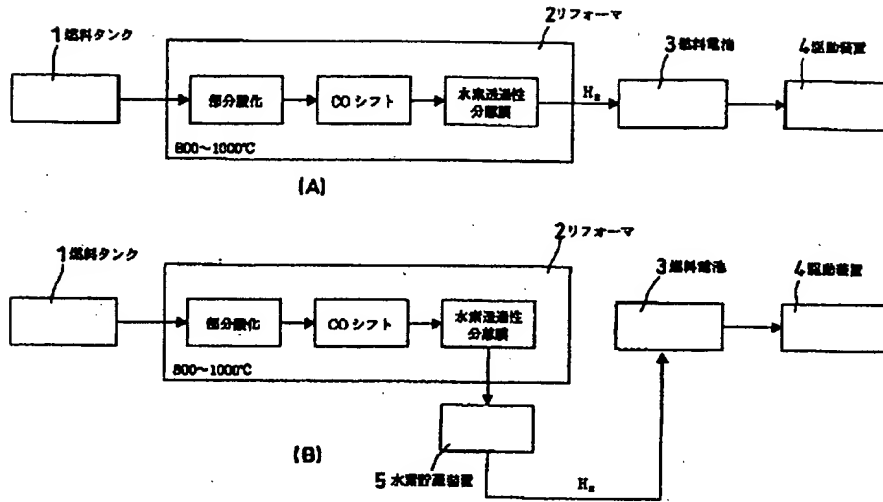
【図4】



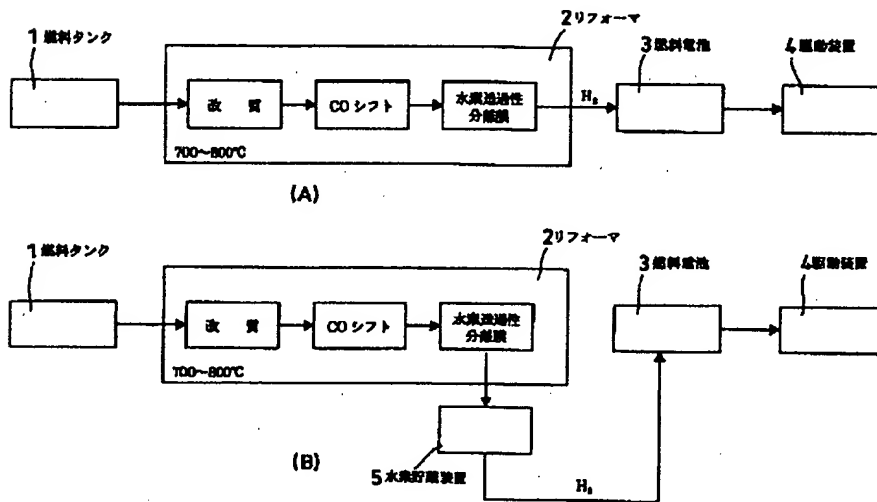
【図5】



【図6】



【図7】



フロントページの続き

(51) Int. Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I

テーマコード(参考)

C 0 1 B 3/56

H 0 1 M 8/04

J

H 0 1 M 8/04

8/10

8/10

B 6 0 K 15/02

Z

Fターム(参考) 3D038 CA11 CB01 CC05 CC07  
4D006 GA41 HA21 MA02 MA31 MB04  
MC02 PB18 PB66 PC80  
4G040 AA12 EA02 EA03 EA06 EA07  
EB31 EB33 FA04 FB02 FB04  
FC01 FE01 FE04  
5H026 AA06  
5H027 AA06 BA01 BA14 BA16 BA17